

## **BUNDESREPUBLIK**



**DEUTSCHES PATENT- UND MARKENAMT** 

# Offenlegungsschrift

<sub>®</sub> DE 198 48 621 A 1

② Aktenzeichen: 198 48 621.9 Anmeldetag: 21. 10. 1998

Offenlegungstag:

(5) Int. Cl.7: C 10 L 1/10

C 10 L 1/22 C 07 C 229/16 C 07-C 229/24

27. 4.2000

Anmelder:

BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

Vertreter:

Patent- und Rechtsanwälte Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck, 68165 Mannheim

② Erfinder:

Wenderoth, Bernd, Dr., 68623 Lampertheim, DE; Hermeling, Dieter, Dr., 67459 Böhl-Iggelheim, DE

#### Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

- Paraffindispergatoren mit Lubricity-Wirkung für Erdölmitteldestillate
- Die Mischung enthält (a) 5 bis 95 Gew.-% mindestens eines Umsetzungsproduktes einer mindestens eine tertiäre Aminogruppe aufweisenden Poly(C2-20-Carbonsäure) mit sekundären Aminen
  - (b) 5 bis 95 Gew.-% mindestens eines Umsetzungsproduktes aus Maleinsäureanhydrid und einem primären Alkylamin.

#### Beschreibung

Die Erfindung betrifft als Paraffindispergatoren mit Lubricity-Wirkung geeignete Mischungen, deren Verwendung in Erdölmitteldestillaten, derartige Erdölmitteldestillate und Konzentrate dafür.

Erdöldestillate, insbesondere Mitteldestillate wie Gasöle, Dieselöle oder leichte Heizöle, die durch Destillation aus Erdölen gewonnen werden, haben je nach Herkunft des Rohöls unterschiedliche Gehalte an Paraffinen. Bei tieferen Temperaturen kommt es zur Ausscheidung fester Paraffine (Trübungspunkt oder Cloud Point, CP). Bei weiterer Abkühlung bilden die plättchenförmigen n-Paraffinkristalle eine Art von "Kartenhausstruktur" und das Mitteldestillat stockt, obwohl der überwiegende Teil des Mitteldestillates noch flüssig ist. Durch die ausgefallenen n-Paraffine im Temperaturbereich zwischen Trübungspunkt (Cloud Point) und Stockpunkt (Pour Point) wird die Fließfähigkeit der Mitteldestillat-Kraftstoffe erheblich beeinträchtigt; die Paraffine verstopfen Filter und verursachen eine ungleichmäßige oder völlig unterbrochene Kraftstoffzufuhr zu den Verbrennungsaggregaten. Ähnliche Störungen treten bei leichten Heizölen auf.

Es ist seit langem bekannt, daß durch geeignete Zusätze das Kristallwachstum der n-Paraffine in den Erdölmitteldestillat-Brenn- und Kraftstoffen modifiziert werden kann. Gut wirksame Additive verhindern, daß Mitteldestillate bei Temperaturen wenige Grade Celsius unterhalb der Temperatur, bei welcher die ersten Paraffinkristalle auskristallisieren, bereits fest werden. Statt dessen werden feine, gut kristallisierende, separate Paraffinkristalle gebildet, welche Filter in Kraftfahrzeugen und Heizungsanlagen passieren oder zumindest einen für den flüssigen Teil der Mitteldestillate durchlässigen Filterkuchen bilden, so daß ein störungsfreier Betrieb sichergestellt ist. Die Wirksamkeit der Fließverbesserer wird nach der europäischen Norm EN 116 indirekt durch Messung des "Cold Filter Plugging Point" (CFPP) ausgedrückt.

Als Fließverbesserer werden seit langem Ethylen-Vinylcarboxilat-Copolymere eingesetzt. Ein Nachteil dieser Additive liegt darin, daß die ausgefallenen Paraffinkristalle aufgrund ihrer gegenüber dem flüssigen Teil höheren Dichte dazu neigen, sich beim Lagern mehr und mehr am Boden des Behälters abzusetzen. Dadurch bildet sich im oberen Behälterteil eine homogene paraffinarme Phase und am Boden eine zweiphasige paraffinreiche Schicht. Da sowohl in den Fahrzeugtanks als auch in Lager- oder Liefertanks der Mineralölhändler der Abzug des Mitteldestillates meist wenig oberhalb des Behälterbodens erfolgt, besteht die Gefahr, daß die hohe Konzentration an festen Paraffinen zu Verstopfungen von Filtern und Dosiereinrichtungen führt. Diese Gefahr wird um so größer, je weiter die Lagertemperatur die Ausscheidungstemperatur der Paraffine unterschreitet, da die ausgeschiedene Paraffinmenge mit sinkender Temperatur zunimmt.

Durch den zusätzlichen Einsatz von Paraffindispergatoren (Wax Anti-Settling Additive) können diese Probleme verngert werden.

So beschreibt EP-A-0 398 101 Umsetzungsprodukte von Aminoalkylenpolycarbonsäuren mit langkettigen, sekundären Aminen als Paraffindispergatoren für Erdölmitteldestillate. Die Wirkung ist jedoch nicht in allen Erdölmitteldestillatzusammensetzungen ausreichend, insbesondere dann, wenn diese einen niedrigen Schwefelgehalt von unter 500 ppm aufweisen.

In DE-A-11 49 843 wird die Verwendung von Maleinamidsäuren und deren Aminsalzen aus primären Aminen und Maleinsäureanhydrid als Korrosionsinhibitoren und Stabilitätsverbesserer für Erdöldestillate wie auch zur Verhinderung der Sedimentbildung beschrieben. In EP-A-0 106 234 wird die Verwendung von Aminsalzen von Maleinamidsäuren aus primären Aminen und Maleinsäureanhydrid als Korrosionsinhibitoren für die Lagerung und den Transport von Rohölen beschrieben.

Seit Oktober 1996 dürfen in der Europäischen Union nur noch schwefelarme Mitteldestillate mit einem Schwefelgehalt von maximal 500 ppm als Dieselkraftstoffe verwendet werden, die aufgrund dessen zu schadstoffärmeren Abgasen beitragen. Ab dem Jahr 2000 darf der maximal zulässige Schwefelgehalt von Dieselkraftstoffen in der Europäischen Union 350 ppm nicht mehr überschreiten. Solche Dieselkraftstoffe zeigen jedoch eine deutlich verminderte Schmierfähigkeit, was zu teilweise hohem mechanischem Verschleiß in Verteilereinspritzpumpen von Dieselmotoren führen kann.

Durch den Zusatz von Lubricity-Additiven kann die Schmierfähigkeit von schwefelarmen Dieselkraftstoffen verbessert werden. Die Wirksamkeit wird gemäß der Norm CEC F-06-A-96 mit dem HFRR-Test (High Frequency Reciprocating Rig-Test) durch Bestimmung der Verschleißgröße WS1.4 in µm bei 60°C ermittelt; je kleiner der WS1.4 ist, desto geringer ist der Verschleiß und desto besser ist die Schmierfähigkeit.

Es gibt zahlreiche Patentanmeldungen für Produkte, welche die Schmierfähigkeit von schwefelarmen Dieselkraftstoffen verbessern können. In WO 95/33805 wird beschrieben, daß Fließverbesserer und Paraffindispergatoren, unter anderem auch Umsetzungsprodukte gemäß EP-A-0-398 101, die Schmierfähigkeit (Lubricity) von Mitteldestillaten verbessern können. Die Lubricitywirkung ist jedoch in vielen Erdölmitteldestillatzusammensetzungen nicht ausreichend.

Es bestand die Aufgabe, verbesserte Produkte zur Verfügung zu stellen, welche eine verbesserte Fließfähigkeit von Erdölmitteldestillaten bei tiefer Temperatur gewährleisten, indem sie eine solche Dispergierwirkung haben, daß ein Absetzen ausgeschiedener Paraffine verzögert oder verhindert wird, und welche gleichzeitig zu einer verbesserten Schmierfähigkeit der Erdölmitteldestillate beitragen.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch eine Mischung, enthaltend

60

- (a) 5 bis 95 Gew.-% mindestens eines Umsetzungsproduktes einer mindestens eine tertiäre Aminogruppe aufweisenden Poly(C<sub>2-20</sub>-Carbonsäure) mit sekundären Aminen und
- (b) 5-95 Gew.-% mindestens eines Umsetzungsproduktes aus Maleinsäureanhydrid und einem primären Alkylamin.

Die Erfindung betrifft auch die Verwendung dieser Mischungen als Zusatz für Erdölmitteldestillate, insbesondere als Paraffindispergator und Lubricity-Additiv. Die Erfindung betrifft ebenfalls diese Mischungen enthaltende Konzentrate und Erdölmitteldestillate.

#### KOMPONENTE (a)

Komponente (a) ist ein Umsetzungsprodukt einer mindenstens eine tertiäre Aminogruppe aufweisenden Poly( $C_{2-20}$ -Carbonsäure) mit sekundären Aminen.

Die Polycarbonsäure enthält dabei vorzugsweise mindestens 3 Carboxylgruppen, besonders bevorzugt 3 bis 12, insbesondere 3 bis 5 Carboxylgruppen. Die Carbonsäuregruppen in der Polycarbonsäure weisen vorzugsweise 2 bis 10 Kohlenstoffatome auf, bevorzugt sind es Essigsäuregruppen. Die Carbonsäuregruppen sind in geeigneter Weise zur Polycarbonsäure verknüpft, etwa über ein oder mehrere C- und/oder N-Atome. Vorzugsweise sind sie an tertiäre Stickstoffatome angebunden, die im Fall mehrerer Stickstoffatome über Kohlenwasserstoffketten verknüpft sind.

Vorzugsweise ist Komponente (a) ein Amid, Amidammoniumsalz, Ammoniumsalz oder ein Gemisch davon von Aminoalkylcarbonsäuren der Formeln I und II

10

20

45

60

wobei A einen geradkettigen oder verzweigten Alkylenrest mit 2 bis 6, vorzugsweise 2 bis 4, insbesondere 2 oder 3 Kohlenstoffatomen oder den Rest der Formel (III)

darstellt, wobei B ein 1 bis 19 Kohlenstoffatome aufweisender Rest, vorzugsweise ein  $C_{1-19}$ -Alkylenrest ist, besonders bevorzugt  $C_{1-10}$ -Alkylenrest, insbesondere ein Methylenrest ist. Vorzugsweise ist A ein Ethylenrest.

Das sekundäre Amin kann aus einer Vielzahl von Aminen ausgewählt sein, die – gegebenenfalls miteinander verbundene – Kohlenwasserstoffreste tragen.

Das sekundäre Amin hat vorzugsweise die Formel HNR<sub>2</sub>, wobei die Reste R unabhängig geradkettige aliphatische Reste sind, insbesondere Alkylreste mit 10 bis 30, bevorzugt 14 bis 24 C-Atomen. Sie weisen vorzugsweise keine Heteroatome oder Doppel- oder Dreifachbindungen auf. Bevorzugt sind die Reste R gleich.

Die sekundären Amine können mittels Amidstrukturen oder in Form der Ammoniumsalze an die Polycarbonsäure gebunden sein, auch zum Teil mittels Amidstrukturen und zum Teil in Form der Ammoniumsalze. Vorzugsweise liegen wenig oder keine freien Säuregruppen vor.

Vorzugsweise sind die Amine vollständig in Form der Amidstrukturen gebunden.

Die Amide, bzw. Amid-Ammoniumsalze bzw. Ammoniumsalze beispielsweise der Nitrilotriessigsäure, Ethylendiamintetraessigsäure oder der Propylen-1,2-diamintetraessisäure werden durch Umsetzung der Säuren mit 0,5 bis 1,5 Mol Amin, bevorzugt 0,8 bis 1,2 Mol Amin pro Carboxylgruppe erhalten.

Die Umsetzungstemperaturen betragen etwa 80 bis 200°C, wobei zur Herstellung der Amide eine kontinuierliche Entfernung des entstandenen Reaktionswassers erfolgt. Die Umsetzung muß jedoch nicht vollständig zum Amid geführt werden, vielmehr können 0 bis 100 mol% des eingesetzten Amins in Form des Ammoniumsalzes vorliegen. Speziell bevorzugte Amine sind Dioleylamin, Dipalmitinamin, Dikokosfettamin und Dibehenylamin, insbesondere Ditalgfettamin.

Die erfindungsgemäßen Mischungskomponenten (a) und ihre Herstellung sind in EP-A-0 398 101 beschrieben. Besonders bevorzugt ist das Umsetzungsprodukt aus einem Mol Ethylendiamintetraessigsäure und vier Mol hydriertem Ditalgfettamin.

Gegebenenfalls können den Mischungskomponenten (a) noch geringe Mengen von Leitfähigkeitsverbesserem in Form von Salzen, insbesondere von kohlenwasserstofflöslichen Carbonsäuren und Sulfonsäuren bzw. deren Metall- und Ammoniumsalzen, zugesetzt sein.

#### Komponente (b)

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Mischungskomponenten (b) erfolgt in an sich bekannter Weise durch Umsetzung von Maleinsäureanhydrid mit C<sub>8-30</sub>-, vorzugsweise primären C<sub>8</sub>- bis C<sub>18</sub>-Alkylaminen im Molverhältnis 1: 1 bei 70 bis 100°C nach dem in DE-A-11 49 843 und EP-A-0 106 234 beschriebenen Verfahren; als primäre Amine kommen alle innerhalb dieser Grenzen definierten Amine in Betracht, z. B. geradkettiges oder verzweigtes Octyl-, Nonyl-, Decyl-, Undecyl-, Dodecyl-, Tricecyl-, Tetradecyl-, Pentadecyl-, Hexadecyl-, Heptadecyl-, Octadecylamin sowie Gemische dieser Amine. Besonders bevorzugt ist das Reaktionsprodukt aus einem Mol Maleinsäureanhydrid und einem Mol Tridecy-

lamin.

Die erfindungsgemäßen Mischungen können durch einfaches Vermischen der Komponenten (a) und (b) hergestellt werden; diese Mischungen werden den Erdöldestillaten in Mengen von 10–1000 ppm, bevorzugt 50 bis 500 ppm, zugesetzt. Der Anteil der Komponente (a) beträgt 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 95, insbesondere 50 bis 90 Gew.-%, der Anteil der Komponente (b) 5 bis 95, vorzugsweise 5 bis 70, insbesondere 10 bis 50 Gew.-%.

Die erfindungsgemäßen Polymermischungen finden Verwendung als Zusatz für Erdölmitteldestillate, worunter Petroleum, leichte Heizöle und Dieselkraftstoffe mit einer Siedetemperatur von etwa 150 bis 400°C verstanden werden. Die Polymermischungen können den Mitteldestillaten direkt, bevorzugt aber als 20 bis 70 Gew.-%ige Lösung (Konzentrat) zugesetzt werden. Geeignete Lösungsmittel sind aliphatische oder aromatische Lösungsmittel wie Xylol oder deren Gemische, weiterhin hochsiedende Aromatengemische wie Solvent Naphtha, sowie Mitteldestillate. Die Menge der Mischung in den Erdölmitteldestillaten beträgt in der Regel 10 bis 10000, vorzugsweise 20 bis 5000 und besonders bevorzugt 50 bis 1000 ppm.

In der Regel enthalten die Mitteldestillate noch Fließverbesserer, z. B. auf Basis von Ethylen/Vinylcarboxilat-Copolymeren. Je nach Verwendungszweck können Mitteldestillate zusätzlich noch weitere Additive wie z. B. Leitfähigkeitsverbesserer, Korrosionsschutz-Additive, Lubricity-Additive. Antioxidantien, Metall-Deaktivatoren. Anti-Schaum-Mittel, Demulgatoren, Detergentien, Cetanzahl-Verbesserer und /oder Farb- und Duftstoffe enthalten.

Die erfindungsgemäßen Mischungen bewirken in Mitteldestillaten unabhängig von deren Herkunft eine deutliche Verbesserung der Fließeigenschaften in der Kälte, indem sie die ausgeschiedenen Paraffinkristalle wirksam in der Schwebe halten, so daß es nicht zu Verstopfungen von Filtern und Leitungen durch sedimentiertes Paraffin kommt. Sie weisen eine gute Breitenwirkung auf und bewirken so, daß die ausgeschiedenen Paraffinkristalle in unterschiedlichen Mitteldestillaten sehr gut dispergiert werden; gleichzeitig tragen sie zu einer verbesserten Schmierfähigkeit der Mitteldestillate bei. Dabei ist die Wirkung der Kombination der Komponenten (a) und (b) wesentlich besser als die Wirkung der Einzel-

komponenten bei gleicher Dosierung.

Die Erfindung wird nachstehend anhand von Beispielen näher erläutert.

#### BEISPIELE

#### Beispiel 1 (Komponente (a))

240 g (0.48 mol) hydriertes Ditalgfettamin (Armeen® 2HT von Akzo) und 35 g (0.12 mol) Ethylendiaminotetraessigsäure wurden aufgeschmolzen und auf 190°C erhitzt, wobei das entstandene Reaktionswasser kontinuierlich abdestillierte. Die Umsetzung wurde nach ca. 25 Stunden bei einer Säurezahl kleiner 10 und einer Aminzahl kleiner 1.1 abgebrochen. Durch Anlegen von Wasserstrahlvakuum (2 Stunden, 120°C) wurde das Reaktionswasser vollständig entfernt. Man erhielt 265 g eines hellbraunen, wachsartigen Feststoffes. Das erhaltene Produkt wurde mit Solvent Naphtha so verdünnt, daß der Feststoffgehalt des Produktes 50 Gew.-% betrug.

#### Beispiel 2 (Komponente (b))

Eine Mischung aus 98 g (1.0 mol) Maleinsäureanhydrid und 199 g (1.0 mol) Tridecylamin wurde in 250 ml Solvent
Naphtha bei ca. 70°C für 2 Stunden unter Rühren erhitzt. Man erhielt eine hellbraune, klare Lösung, die anschließend mit
Solvent Naphtha so verdünnt wurde, daß der Feststoffgehalt des Produktes 50 Gew.-% betrug.

#### Verwendungsbeispiele

Die erfindungsgemäßen Mischungen wurden in zwei handelsüblichen deutschen Winter-Dieselkraftstoffen geprüft, die der europäischen Dieselkraftstoff-Norm EN 590 entsprechen; sie werden als D1 und D2 bezeichnet und sind durch folgende physikalische Daten charakterisiert:

50

25

55

60

THIS PAGE BLANK (USPTO) THIS PAGE BLANK (USPTO)

		T	
	D 1 (97/526)	D 2 (96/86)	
Cloud Point (°C) nach ISO 3015:	-6	-6	5
CFPP (°C) nach EN 116:	-10	-8	-
Dichte bei 15°C (kg/m³) nach ASTM D 4052:	841	834	10
Schwefelgehalt (ppm) nach EN 24260:	160	200	
WS1.4 (μm) nach CEC F-06-A-96:	542		
Destillation nach ISO 3405:	·		15
Siedeanfang (°C)	170	171	
5 % Siedepunkt (°C)	203	193	20
10 % Siedepunkt (°C)	215	200	20
20 % Siedepunkt (°C)	235	212	
50 % Siedepunkt (°C)	280	249	25
70 % Siedepunkt (°C)	308	282	
90 % Siedepunkt (°C)	347	329	
95 % Siedepunkt (°C)	364	345	30
Siedeende (°C)	371	360	

Folgende Erdölmitteldestillatzusammensetzungen wurden geprüft: Erdölmitteldestillatzusammensetzungen, enthaltend

1. als Paraffindispergator

eine der erfindungsgemäßen Mischungen PD1 (bestehend aus 83 Gew.-% Komponente (a) aus Beispiel 1 und 17 Gew.-% Komponente (b) aus Beispiel 2), PD2 (bestehend aus 50 Gew.-% Komponente (a) aus Beispiel 1 und 50 Gew.-% Komponente (b) aus Beispiel 2), PD3 (bestehend aus 67 Gew.-% Komponente (a) aus Beispiel 1 und 33 Gew.-% Komponente (b) aus Beispiel 2) oder PD 4 (bestehend aus 90 Gew.-% Komponente (a) aus Beispiel 1 und 10 Gew.-% Komponente (b) aus Beispiel 2) bzw. als Vergleichsbeispiele die jeweiligen Einzelkomponenten aus Beispiel 1 und Beispiel 2 bzw. keine der Komponenten (Vergleichsbeispiele V2, V3, V1). V1 enthält damit nur MDFI als Additiv und

2. als Fließverbesserer MDFI

ein Produkt auf Basis von Ethylen-Vinylcarboxilat, welches unter dem Handelsnamen Keroflux® Es 6100 von der BASF AG vermarktet wird.

#### Beschreibung der Testmethode

Die Mitteldestillate wurden mit den in der Tabelle angegebenen Mengen der erfindungsgemäßen Mischungen PD1 bis PD4 bzw. der Beispiele 1 und 2 und des Fließverbesserers MDFI bei 40°C unter Rühren additiviert und anschließend auf Raumtemperatur abgekühlt.

Von den additivierten Mitteldestillatproben wurde der "Cold Filter Plugging Point" (CFPP) nach EN 116 und einigen Fällen auch der WS 1.4 nach CEC-F-06-A-96 bestimmt.

Die additivierten Mitteldestillate wurden in 500 ml-Glaszylindern in einem Kältebad von Raumtemperatur mit einer Abkühlungsrate von ca. 14°C pro Stunde auf –13°C abgekühlt und 20 Stunden bei dieser Temperatur gelagert. Anschließend wurden visuell Menge und Aussehen der Paraffinphase bestimmt und beurteilt.

Von der bei -13°C abgetrennten 20 Vol.-%-Bodenphase wurde von jeder Probe der "Cold Filter Plugging Point" (CFPP) nach EN 116 und der Cloud Point (CP) nach ISO 3015 ermittelt. Je geringer die Abweichung des Cloud Point der 20 Vol.-%-Bodenphase vom Original-CP des jeweiligen Mitteldestillates ist, um so besser sind die Paraffine dispergiert.

Die erhaltenen Ergebnisse sind in den Tabellen 1 und 2 aufgeführt:

65

50

55

60

Tabelle 1

Dispergierversuche in D1, CP: -6°C, CFPP: -10°C, WS1.4: 542 µm

Mischung	1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1		dispergierte	20%-Bodenphase				
(ppm) (p	(ppm)	) (μm)	(°C)	sediment (Vol%)	Paraffine (Vol%)	CFPP (°C)	CP (°C)	
PD 1	150	200		-30	10	90	-29	-6
PD 2	150	200	310	-25	10	90	-27	-6
PD 3	150	200		-26	10	90	-28	-6
PD 4	150	200	328	-28	10	90	-27	-5
Vi		200	526	-25	44	0	-18	0
V2	150	200	394	-25	46	54	-20	-2
V3	150	200	369	-23	42	58	-23	-3

Tabelle 2

Dispergierversuche in D2, CP: -6°C, CFPP: -8°C

Mischung	Dosierung	MDFI	CFPP	Paraffin-	dispergierte	20%-Bodenphase	
	(ppm)	(ppm)	(°C)	sediment (Vol%)	Paraffine (Vol%)	CFPP (°C)	CP (°C)
PD 1	300	300	-23	6	94	-18	-5
PD 3	300	300	-20	8	92	-27	-5
PD 4	300	300	-29	8	92	-20	-5
VI		300	-22	30	0	-1	+3
V2	300	300	-30	10	90	-20	-3
V3	300	300	-20	30	70	-7	+2

Aus den Versuchsergebnissen geht hervor, daß die erfindungsgemäßen Mischungen in Erdölmitteldestillaten einen niedrigeren Cloud Point der 20%-Bodenphase bewirken als die Mischungen der Vergleichsbeispiele.

Dies zeigt, daß durch die erfindungsgemäßen Mischungen der Komponenten (a) und (b) in Erdölmitteldestillaten unabhängig von ihrer Herkunft die ausgefallenen Paraffinkristalle wirksam in der Schwebe gehalten werden, so daß es nicht zu Verstopfungen von Filtern und Leitungen durch sedimentiertes Paraffin kommen kann. Die erfindungsgemäßen Mischungen weisen eine sehr gute Breitenwirkung auf und bewirken, daß die ausgeschiedenen Paraffinkristalle in unterschiedlichen Mitteldestillaten sehr gut dispergiert werden.

Gleichzeitig zeigen die Versuchsergebnisse, daß die erfindungsgemäßen Mischungen bei gleicher Gesamtdosierung zu einem geringeren WS1.4 und damit zu einer verbesserten Schmierfähigkeit von schwefelarmen Dieselkraftstoffen führen als die jeweiligen Einzelkomponenten.

#### Patentansprüche

1. Mischung, enthaltend,

- (a) 5 bis 95 Gew.-% mindestens eines Umsetzungsproduktes einer mindestens eine tertiäre Aminogruppe aufweisenden Poly(C<sub>2-20</sub>-Carbonsäure) mit sekundären Aminen und
- (b) 5-95 Gew.-% mindestens eines Umsetzungsproduktes aus Maleinsäureanhydrid und einem primären Alkylamin.
- 2. Mischung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die mindestens eine tertiäre Aminogruppe aufweisende  $Poly(C_{2-20}\text{-}Carbonsäure)$  die nachstehende Formel I oder II aufweist

65

55

HOOC — B 
$$\longrightarrow$$
 B — COOH  $\longrightarrow$  HOOC — B  $\longrightarrow$  B — COOH

B — COOH

N — B — COOH

(II)

wobei A einen geradkettigen oder verzweigten  $C_{2-6}$ -Alkylenrest oder den Rest der Formel III

$$--CH2 ---CH2 ----CH2 ----CH2 ---- (III)$$

$$B ----COOH$$

darstellt, worin B ein C<sub>1-19</sub>-Alkylenrest ist.

- 3. Mischung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Umsetzungsprodukt (a) ein Amid, Amidammoniumsalz oder Ammoniumsalz ist, in dem keine, eine oder mehrere Carbonsäuregruppen in Amidgruppen überführt sind.
- 4. Mischung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß das sekundäre Amin der Komponente (a) die allgemeine Formel HNR<sub>2</sub> aufweist, wobei die Reste R C<sub>10-30</sub>-Alkylreste sind, die geradkettig oder verzweigt sind.
- 5. Mischung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das primäre Alkylamin der Komponente (b) ein  $C_{8-30}$ -Alkylamin ist.
- 6. Verwendung einer Mischung nach einem der Ansprüche 1 bis 5 als Zusatz für Erdölmitteldestillate.
- 7. Verwendung nach Anspruch 6 als Paraffindispergator und Lubricity-Additiv für Erdölmitteldestillate.
- 8. Erdölmitteldestillate, enthaltend eine Mischung nach einem der Ansprüche 1 bis 7.
- 9. Erdölmitteldestillat nach Anspruch 8, weiterhin enthaltend Fließverbesserer, Leitfähigkeitsverbesserer, Korrosionsschutzadditive, Lubricity-Additive, Antioxidantien, Metall-Deaktivatoren, Anti-Schaummittel, Demulgatoren, Detergentien, Cetanzahl-Verbesserer, Farbstoffe, Duftstoffe oder Gemische davon.
- 10. Konzentrat, enthaltend 10-60 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge des Konzentrats, an einer Mischung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, gelöst in einem Kohlenwasserstofflösungsmittel.

45

50

35

10

15

20

55

60

THIS PACE BLAMM (USPTO)

- Leerseite -

THIS PAGE BLANK WSFFOF